

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-278535

(43)Date of publication of application : 28.10.1997

---

(51)Int.Cl.

C04B 35/628

C04B 35/49

H01L 41/187

H01L 41/22

---

(21)Application number : 08-089217

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 11.04.1996

(72)Inventor : HORIUCHI KAZUSHI

---

## (54) PRODUCTION OF CERAMIC

### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a ceramic excellent in piezoelectricity and mechanical strength etc., even if subjected to low-temperature baking, by calcinating stock powder with the particle size below a specified level at a temperature comparable to the baking temperature or higher followed by grinding and then baking.

SOLUTION: First, stock powder such as of PbO, SrCO<sub>3</sub>, ZnO, SnO<sub>2</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, TiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub> and/or MnCO<sub>3</sub> is ground so as to be  $\leq 0.5\mu\text{m}$  in particle size using e.g. a ball mill. Secondly, the ground powder is calcined at a temperature comparable to the baking temperature or higher and then ground so as to be  $\leq 0.5\mu\text{m}$  in particle size. Thirdly, a binder is added to the resultant powder followed by homogeneous mixing, and the resultant mixture is molded to a desired shape. Finally, the molding is heat-treated to burn off the binder and then baked to obtain the objective ceramic. By this method, because the particle size is small and the temperature of the calcination is comparable to or higher than the baking temperature, the rate of reaction is raised and the crystallinity of the stock is improved, thus obtaining the objective ceramic having electrical properties comparable to those of ceramics produced by high-temperature baking and excellent in mechanical strength.

---

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-278535

(43) 公開日 平成9年(1997)10月28日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 4 B	35/628		C 0 4 B 35/00	B
	35/49		35/49	Q
H 0 1 L	41/187		H 0 1 L 41/18	1 0 1 D
	41/22		41/22	Z

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 3 頁)

(21) 出願番号 特願平8-89217

(22) 出願日 平成8年(1996)4月11日

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 堀内 一志

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(74) 代理人 弁理士 滝本 智之 (外1名)

(54) 【発明の名称】 セラミックスの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 低温で焼成したとしてもすぐれた電気特性を有するセラミックスを提供することを目的とするものである。

【解決手段】 粒子径を0.5  $\mu$ m以下の原料粉体を焼成温度と同等以上の高温で仮焼し、次に粉碎して成形した後焼成するものであり、粒子径を小さくして高温で仮焼することにより、原料粉体の反応を促進し結晶性を向上させることができるので、電気特性にすぐれたセラミックスを得ることができる。

**【特許請求の範囲】**

**【請求項1】** 粒子径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の原料粉体を焼成温度と同等以上の温度で仮焼し、粉碎した後に、焼成することを特徴とするセラミックスの製造方法。

**【請求項2】** 原料粉体は、鉛系の材料であることを特徴とする請求項1に記載のセラミックスの製造方法。

**【請求項3】** 仮焼後の粉碎した粉体の粒子径が $0.5\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項1に記載のセラミックスの製造方法。

**【発明の詳細な説明】****【0001】**

**【発明の属する技術分野】** 本発明は例えば圧電磁器などのセラミックスの製造方法に関するものである。

**【0002】**

**【従来の技術】** 従来より、原料粉体の仮焼は焼成温度よりも低い温度で行われていた。

**【0003】**

**【発明が解決しようとする課題】** 原料粉体の粒径が $1.0\mu\text{m}$ 以下と小さくなるにしたがい、焼成温度を低くすることができる。しかし、圧電材料においては、原料粉体の粒径を小さくして低温焼成すると、圧電性が低く、高強度、高出力のセラミックスを得ることが困難であった。

**【0004】** そこで、本発明は低温焼成においても優れた圧電性を示し、さらに高強度、高出力を可能にするセラミックスを提供することを目的とするものである。

**【0005】**

**【課題を解決するための手段】** この目的を達成するために本発明は、粒子径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の原料粉体を焼成温度と同等以上の温度で仮焼し、粉碎した後に、焼成するものであり、原料粉体の粒子径を微細にし、仮焼温度を焼成温度と同等以上にすることにより、反応速度が増し、結晶性が向上するので、低温焼成においても高温焼成と同様の圧電性を示し、さらに結晶粒径の微細化にと

もない高強度のセラミックスを得ることができる。

**【0006】**

**【発明の実施の形態】** 本発明の請求項1に記載の発明は、粒子径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の原料粉体を焼成温度と同等以上の温度で仮焼し、粉碎した後に焼成するものであり、原料粉体の粒子径を微細にし、仮焼温度を焼成温度と同等以上にすることにより、反応速度が増し、結晶性が向上するので、低温焼成においても高温焼成と同様の圧電性を示し、さらに結晶粒径の微細化にともない高強度磁器を得ることができる。

**【0007】** 請求項2に記載の発明は、原料粉体として鉛系の材料を用いるものであり、原料粉体の粒子径を微細にすることにより、焼成温度と同等以上の温度で仮焼したとしても、鉛成分の飛翔量が少なく、結晶性のすぐれた粉体を得ることができるので、低温焼成した場合でも、圧電性のよい高出力、高強度のセラミックスを得ることができる。

**【0008】** 請求項3に記載の発明は、仮焼後の粉碎した粉体の粒子径を $0.5\mu\text{m}$ 以下とするものであり、原料粉体の粒径と同等以下にすることにより、より低温で焼成することができる。

**【0009】** 以下本発明の一実施の形態について説明する。

(実施の形態1) まず、出発原料として、 $\text{PbO}$ 、 $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{MnCO}_3$ を用いて、 $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.06}(\text{Sn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.12}\text{Ti}_{0.42}\text{Zr}_{0.40}\text{O}_3 + 0.5\text{wt}\%\text{MnO}_2$ となるように秤量した。次にこれらの原料に水、分散剤などを加えて、媒体攪拌ミルまたはボールミル等で湿式混合し、混合粒子径が(表1)に示すようになるようにした。

**【0010】****【表1】**

No	混合 粒径 $\mu\text{m}$	仮焼 温度 $^{\circ}\text{C}$	粉碎 粒径 $\mu\text{m}$	焼成 温度 $^{\circ}\text{C}$	焼結 密度 $\text{kg}/\text{m}^3$	誘電率 $\epsilon_{33T}$ $/\epsilon_0$	kp
1*	0.6	950	0.3	1100	7600	1020	0.5
2*	0.6	950	0.3	1150	7637	1069	0.53
3*	0.6	950	0.3	1200	7700	1130	0.55
4*	0.6	1170	1	1150	7527	953	0.47
5*	0.6	1170	0.4	1150	7714	1080	0.532
6*	0.5	950	0.45	1100	7620	1045	0.51
7*	0.5	950	0.45	1150	7730	1076	0.528
8*	0.5	950	0.45	1200	7800	1143	0.55
9*	0.5	1170	1	1150	7597	970	0.489
10*	0.5	1170	0.55	1150	7780	1170	0.55
11	0.5	1170	0.45	1150	7880	1300	0.570
12	0.5	1170	0.2	1100	7890	1285	0.581
13	0.5	1170	0.2	1150	7950	1357	0.59
14	0.5	1170	0.2	1200	7950	1360	0.59
15	0.5	1200	0.2	1100	7896	1298	0.583
16	0.5	1200	0.2	1150	7947	1390	0.588
17	0.5	1200	0.2	1200	7880	1378	0.592
18	0.5	1200	0.1	1150	7980	1380	0.587
19*	0.2	1000	0.5	1100	7700	1200	0.631
20*	0.2	1000	0.5	1150	7880	1223	0.55
21*	0.2	1000	0.5	1200	7950	1220	0.548
22*	0.2	1150	0.8	1100	7598	900	0.461
23*	0.2	1150	0.8	1150	7630	1037	0.504
24*	0.2	1150	0.8	1200	7676	1099	0.511
25	0.2	1150	0.4	1100	7803	1278	0.578
26	0.2	1150	0.4	1150	7960	1320	0.584
27	0.2	1200	0.4	1150	7977	1407	0.588
28	0.12	1150	0.2	1100	7889	1338	0.58
29	0.12	1150	0.2	1150	7981	1390	0.587
30	0.12	1200	0.2	1150	7985	1420	0.59

【0011】次いで、この混合粉でスラリーを作成し、乾燥後、粉体のままでマグネシア磁器坩堝に入れ、(表1)の温度条件で2時間仮焼した。解砕後、混合時と同じ条件でボールミルまたは媒体攪拌ミル等で湿式粉碎した。乾燥後、バインダーを加え、擂潰機で均質に攪拌した後、32メッシュの篩を用いて整粒を行った。この粉体を直径13mm、厚み1mmの円板に70MPaの圧力で成形した。次いでこの成形物を700℃の空气中で熱処理を行ってバインダーを焼却した。バインダーの焼却後鉛成分の飛散を防ぐために、1100～1200℃、空气中で焼成を行った。次にこの焼結体を厚みを0.3mmに平面研磨後、電極は真空蒸着でCr-Auをつけた。分極は150℃のシリコン油中で3kV/mの直流電流を30分印加して行った。また圧電定数を共振-反共振法で測定した。その結果を(表1)に記す。(表1)から明らかなように、従来の工法では、焼成温度が1290℃以上でなければ得られない圧電特性が、本実施の形態による圧電セラミックスは、混合粒径を0.5 $\mu\text{m}$ 以下に粉碎し、仮焼温度を焼成条件と同等以上で行った粉体を0.5 $\mu\text{m}$ 以下に粉碎した場合、1100℃の低温焼結の場合でも誘電率が1270以上結

合係数が0.58以上と従来の製造方法以上の圧電性が得られることがわかる。

【0012】さらに好ましくは混合粒径を0.2 $\mu\text{m}$ 以下、また仮焼後の粉体の粒径を0.2 $\mu\text{m}$ 以下にすることによりさらにすぐれた圧電特性を有する圧電磁器を得ることができる。

【0013】なお、本実施の形態での組成は一例であって、他にも $\text{PbO-TiO}_2\text{-ZrO}_2\text{-(Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_2$ ,  $\text{PbO-TiO}_2\text{-ZrO}_2\text{-(Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_2$ ,  $\text{PbO-TiO}_2\text{-(Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_2$ ,  $\text{PbO-TiO}_2\text{-ZrO}_2\text{-(Sn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_2$ 系など鉛を含む材料つまり固相反応を発生するセラミック材料についても同様の作用を得た。

【0014】

【発明の効果】以上のように、本発明によると、例えばセラミックスの組成が $\text{PbO-ZrO}_2\text{-TiO}_2$ 系のような鉛系を含む圧電材料の場合、仮焼段階で結晶性の優れた粉体を得ることができるもので、その粉体を用いて得られた焼結体は、低温焼結した場合でも高温焼成の場合と同様以上の圧電性の良い高出力・高強度を有するものである。